

# Pembuatan dan Karakteristik Serbuk Piezoelektrik $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ tanpa substitusi dan dengan Nb substitusi

Silvester Tursiloadi

Pusat Penelitian dan Pengembangan Kimia Terapan  
Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia  
Kawasan Puspitak Serpong 15314 Indonesia

## INTISARI

Karakteristik dari piezoelektrik PZT dan PZT yang didope dengan niobium (PNZT) yang dibuat melalui proses kimia telah diamati. PZT 55/45 tanpa dope dan di dope dengan  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  telah dibuat dengan dekomposisi hidrolisa dari campuran metal alkoksida, dan reaksi zat padat dari  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  dan  $\text{TiO}_2$ . Ukuran partikel rata-rata adalah  $0.45 \mu\text{m}$ . Hasil difraksi sinar X menunjukkan bahwa, transformasi dari endapan bentuk amorf menjadi bentuk kristal PZT setelah diklasinasi pada suhu  $500^\circ\text{C}$  selama 6 jam. Hasil deferensiasi termal analisis menunjukkan terjadinya fasa antara  $(\text{PbTiO}_3)$  pada  $490^\circ\text{C}$ . Dengan difraksi sinar X, terjadinya fasa-fasa tertragonal dan rombohedral dari ferroelektrik PZT yang tergantung dari komposisi kimia awal pencampuran dapat diamati. Serbuk PZT yang dibuat dari pencampuran metal alkoksida, mudah mengalami aglomerasi pada suhu kalsinasi yang rendah, dan bila bahan tersebut dikalsinasi pada suhu diatas  $600^\circ\text{C}$  akan memberikan hasil sinter yang kurang baik. Serbuk yang dikalsinasi pada  $500^\circ\text{C}$  selama 6 jam dan dilanjutkan pada  $1200^\circ\text{C}$  memberikan berat jenis yang tinggi, sekitar 95% dari berat jenis yang dihitung secara teoritis.

Dari hasil percobaan dapat diperkirakan bahwa dengan pengadukan yang seksama terhadap reaktan selama proses dekomposisi hidrolitik dapat menghasilkan serbuk yang homogen. Akan tetapi perbedaan kecepatan hidrolisa atau polimerisasi dari masing-masing metal alkoksida menyebabkan hasil yang stoikimetrik susah didapat.

## ABSTRACT

The characteristics of chemically prepared piezoelectric PZT and doped PZT with niobium (PNZT) were investigated. PZT 55/45, both unmodified and doped with  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  were prepared by the hydrolysis of metal alkoxides and solid state reaction from  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}_2$  and  $\text{TiO}_2$ . The average particle size was  $0.45 \mu\text{m}$ . X-ray diffraction results indicated that transformation of the amorphous precipitate to well crystallized PZT after heating at  $500^\circ\text{C}$  for 6 hours. DTA results suggested the formation of an intermediate  $\text{PbTiO}_3$  phase at  $490^\circ\text{C}$ . Using X-ray diffraction can be investigated occurring of both tetragonal and rhombohedral ferroelectric PZT phases. That case depends on the initial mixing of chemical composition. The PZT powders which prepared from alkoxides were agglomerated easily at low temperature calcining. Poor sintered bodies will be resulted if it was calcinated above  $600^\circ\text{C}$ . Powders calcined at  $500^\circ\text{C}$  for 6 hours and sintered at  $1200^\circ\text{C}$  produced high body densities approaching 95% of theoretical density.

The experimental results suggest that intimate mixing of constituents during the hydrolytic decomposition produces a

homogeneous powder. However, differences in the rate hydrolysis or polymerization of the respective metal alkoxides tend to cause the stoichiometric results difficult to be found.

## PENDAHULUAN

Keramik Timbal zirkonat titanat [ $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  atau PZT] penggunaannya sangat luas sebagai bahan-bahan ferroelektrik, seperti piezoelektrik, elektro-optik, elektro akoustik dan efek non linear optik, sebab PZT mempunyai koefisien *piezoelectric coupling* yang tinggi<sup>1,2</sup>. Sifat-sifat ferroelektrik telah diketahui terjadi hanya pada beberapa kristal yang tidak mempunyai struktur *centrosymmetric*.

Pengaruh penambahan elemen lain secara substitusi (dope) pada pembuatan keramik PZT telah banyak dipelajari, dimana jenis substitutornya (*dopand*) terbagai menjadi dua tipe<sup>3</sup>. Tipe dopant yang pertama adalah sebagai asektor yang mempunyai karakter menaikkan coercive fields, electrical, dan faktor kualitas mekanik. Tipe yang kedua adalah sebagai donor yakni atom-atom lantanida dan tanah jarang, yang mempunyai tendensi menaikkan konstanta dielektrik dan menurunkan coercive field. Efek dopant dinyatakan atas dasar kompensasi kekosongan dalam lattice perovskite. Fungsi dari penambahan elemen dopant dalam senyawa PZT sangat diperlukan didalam aplikasinya pada pembuatan memori ferroelektrik, karena dapat memberikan coercive fieldnya yang rendah, dan kecepatan aging dielektriknya lebih lambat dibanding dengan PZT tanpa dope. Diantara donor dopant, lantanida (yakni La dan Nb) mempunyai efek yang spesifik, yang dihasilkan pada sifat-sifat material PZT. Atom La mempromosikan pertumbuhan butir yang seragam, kekompakan yang homogen dari fasa tunggal dan mikrostruktur yang bebas dari pori-pori dalam keramik PZT<sup>4</sup>. Penambahan atom Nb dalam keramik PZT akan menaikkan konstanta dielektrik, menghalangi pertumbuhan butir dengan merintangi mobilitas batas butir dan menaikkan poses sinter.

Pembuatan dan sifat-sifat dari keramik yang dibuat dari campuran serbuk oksida sebagai bahan dasar telah banyak dipelajari<sup>5</sup>. Metode pencampuran serbuk oksida menghasilkan bahan-bahan dengan kemurnian rendah, mempunyai komposisi dan struktur tidak homogen dalam keramik, sehingga mempengaruhi sifat-sifat ferroelektrik dari material yang dihasilkan. Di sisi lain parameter yang perlu diperhatikan dalam pembuatan keramik ini adalah ukuran partikel dari serbuk



materialnya. Karena ukuran partikel yang kecil umumnya menunjukkan reaktifitas kimia dan termal yang tinggi. Oleh karena itu untuk membuat material yang mempunyai berat jenis yang tinggi harus dibuat dari bahan dasar yang mempunyai ukuran kristal kecil. Jadi teknik pembuatan yang dapat menghasilkan material dengan kemurnian yang tinggi dan serbuk yang halus adalah sangat diperlukan. Kemurnian yang tinggi dari serbuk submicron keramik merupakan bagian yang menarik pada pembuatan material ferroelektrik, piezoelektrik dan elektro-optik yang kompak. Berbagai macam metode pembuatan serbuk keramik yang halus telah diamati<sup>1,2,5)</sup>, tetapi untuk mendapatkan hasil yang mempunyai sifat stokiometrik yang konsisten, kemurnian yang tinggi dan serbuk sub-micron masih perlu diteliti.

Pembuatan serbuk PZT dengan proses kimia dapat menghasilkan material yang lebih halus, sehingga prosesnya akan lebih mudah dibanding pencampuran serbuk oksida, sebab pada skala serbuk sub-micron, ukuran partikel yang lebih kecil mempunyai kecenderungan yang lebih besar untuk membentuk agregat selama kalsinasi. Partikel agregat ini mempermudah terbentuknya material yang kompak dan seragam, ukuran pori-pori yang kecil, dan dengan perlakuan sinter pada suhu yang relatif rendah akan didapat berat jenis relatif 100%.

Dalam penelitian ini Nb dipilih sebagai dopant untuk diamati perubahan ukuran kristal dan pengaruh dalam berat jenis yang dihasilkan. Komposisi keramik  $Pb(Zr_{0.55}Ti_{0.45})O_3$  dipilih sebagai dasarnya. Ion  $Nb^{5+}$  didopekan pada posisi  $(Zr,Ti)^{4+6,7)}$  yang akan memberikan rumus kimia untuk dope Nb pada PZT 55/45 sebagai  $Pb_{1-x/2}Nb_x(Zr_{0.55}Ti_{0.45})_{1-x}O_3$  (PNZT). Dalam naskah ini juga dilaporkan, sifat-sifat dan karakteristik dari ferroelektrik timbal zirkonat titanat dan timbal niobat zirkonat titanat yang telah dibuat dari metal alkoksida dengan cara pengendapan. Metoda yang dipilih untuk diteliti adalah dekomposisi hidrolisa dimana metoda ini telah dilaporkan lebih unggul dari pada metoda dekomposisi termal<sup>8,9)</sup> yang merupakan metode tradisional. keunggulan metoda dekomposisi hidrolisa adalah :

- 1). Serbuk ferroelektrik dengan komposisi stoikiometri yang tepat siap diperoleh.
- 2). Serbuk yang halus dengan campuran yang seragam mudah terendapkan.
- 3). Kontaminasi dapat dihindari sehingga menghasilkan serbuk dengan kemurnian yang tinggi.

Dalam tulisan ini dilaporkan perbandingan sifat-sifat endapan PZT dan PNZT yang dibuat dengan larutan alkoksida dan dengan metoda konvensional dari campuran oksida untuk dapat dipilih metoda yang unggul dalam pembuatan bahan ferroelektrik.

## PERCOBAAN

### Pembuatan contoh :

Timbal Zirkonat titanat dibuat dengan dua macam metoda yang berbeda, yaitu :

- 1) Pengendapan dari campuran metal alkoksida.
- 2) Kalsinasi konvensional dari campuran oksida.

### 1) Pengendapan dari campuran metal alkoksida.

Bahan dalam bentuk alkoksida mudah terhidrolisa sehingga pelarut yang dipakai harus bebas air. PZT 55/45 dibuat dengan melarutkan metal alkoksida dalam etanol, direflux dan diaduk pada suhu 76°C selama 1 jam. Alkoksida yang digunakan adalah timbal iso propoksida  $Pb(iso-OC_3H_7)_4$ , Zirkonium tetranormal butoksida  $Zr(OC_4H_9)_4$  dan tetra isopropil orto titanat  $Ti[(CH_3)_2CHO]_4$ . Reaksi pengendapan dilakukan dalam tabung reaksi gelas dengan menggunakan mantel pemanas. Tube Kalsium dimasukkan kedalam reflux kondensor untuk menjaga dari kotoran yang masuk pada tabung reaksi. Konsentrasi dari PZT ditentukan sebesar 0.08 M. Kemudian dilakukan penambahan air yang telah dicampur dengan etanol/air (10% wt. air) berlebih 10 kali dari stoikiometri yang diperlukan. Penambahan etanol/air perlahan-lahan ke dalam campuran alkoksida, setelah itu pengadukan dilanjutkan selama 1 jam, kemudian suhu diturunkan sampai pada suhu kamar dan endapan didiamkan selama 24 jam. Endapan yang terjadi disaring dan dicuci dengan etanol, kemudian dikeringkan pada suhu 80°C selama 12 jam. Pencucian endapan dengan air dihindari sebab tegangan muka air yang relatif tinggi dapat mengakibatkan aglomerasi dari endapan. PNZT dibuat dengan mendope 2 mol% Nb pada PZT 55/45 dengan cara menambahkan  $Nb_2O_5$  pada campuran alkoksida. Endapan yang diperoleh kemudian dikeringkan.

### 2). Kalsinasi konvensional dari campuran oksida.

Campuran timbal oksida, zirkonium dan titanium oksida dengan perbandingan molar 1:055:045 untuk Pb:Zr:Ti dilakukan dengan "wet ball milled" dalam etanol selama 6 jam, disaring, dikeringkan pada suhu 80°C selama 12 jam dan kemudian dihaluskan kembali. Campuran oksida itu kemudian dikalsinasi dalam udara pada 600°C, 800°C dan 900°C masing-masing selama 2 jam.

Contoh serbuk PZT dan PNZT kering yang telah dibuat dan metode pembuatannya dijelaskan dalam tabel 1 berikut:

Tabel 1. Kondisi pembuatan PZT dan PNZT

Simbol contoh	Suhu pembuatan	Metoda pembuatan
A	76°C	Pengendapan dari campuran metal alkoksida
B	76°C	Pengendapan dari campuran metal alkoksida yang didope dengan 2 mol% $Nb^{5+}$
C	Suhu kamar	campuran dari $PbO$ , $ZrO_2$ dan $TiO$ dengan wet ball milled selama 6 jam.



## Karakterisasi bahan:

### Differential thermal analysis (DTA)

Serbuk contoh dianalisa dengan DTA (Rigaku Thermoanalyzer M 80 76). Kecepatan pemanasan  $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  dalam lingkungan udara dan DTA range  $\pm 50$  v.

### Difraksi sinar X (XRD)

Contoh dianalisa dengan difraksi sinar X dengan metoda bubuk dengan kondisi operasi sebagai berikut: Merk Rigaku dengan menggunakan Cuka radiasi, Filter Ni atau mono, Tegangan 30 kV, Arus 15 mA, konstanta waktu 1 detik, Kecepatan scanning  $2^{\circ}/\text{menit}$ , Kecepatan kertas 2 cm/menit, *soller slit 1, divergency slit 1, scatterslit 1 dan receiving slit 0.3 mm*.

### Spektrum infra merah (IR)

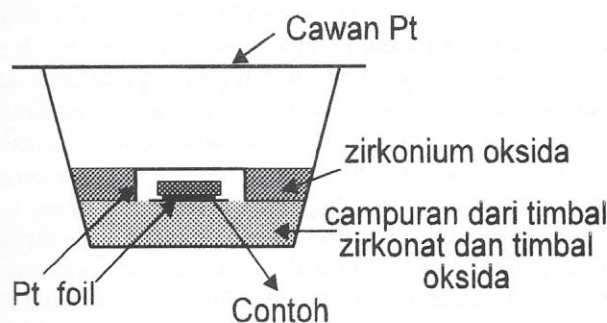
Contoh dianalisa FTIR merk Biorad dengan menggunakan metode sel KBr dengan jarak bilangan gelombang  $4000\text{--}400\text{ cm}^{-1}$ .

### Ukuran partikel

Distribusi ukuran partikel ditentukan dengan menggunakan Shimadzu Centrifugal Particel Analyzer SA-CP 2. Media suspensi yang digunakan adalah etanol dan kecepatan rotasinya 1000 rpm.

### Proses sinter.

Telah diketahui bahwa timbal oksida dalam larutan padat timbal zirkonat titanat mempunyai sifat mudah menguap. Kehilangan timbal oksida pada proses sinter suhu tinggi, dapat dikontrol dengan mencampur bahan tersebut dalam lingkungan yang mengandung uap timbal oksida.<sup>4,6</sup> Untuk alasan tersebut, contoh yang akan digunakan ditempatkan pada cawan platina, dan dilindungi oleh serbuk  $\text{ZrO}_2$  dan  $\text{PbZrO}_3$  (gambar 1).



Gambar 1. Penampungan lintang dari cawan platina yang digunakan pada proses sinter.

Contoh dicetak menjadi bentuk pelet dengan ukuran diameter 5 mm. tanpa menggunakan bahan pengikat. Cawan disusun sedemikian rupa (gambar 1) selanjutnya diletakkan dalam furnace dan dipanaskan dalam udara dengan kecepatan pemanasan  $8^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  sampai suhu sinter tercapai. Berat jenis diukur dengan menggunakan metoda piknometrik standar.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### 1). DTA dan difraksi sinar X

Hasil DTA dari contoh endapan alkoksida untuk pembuatan PZT dan PNZT, memperlihatkan adanya puncak endotermik pada  $100^{\circ}\text{C}$  yang menunjukkan terjadinya dehidrasi dan puncak-puncak eksotermik pada sekitar  $340^{\circ}\text{C}$ ,  $490^{\circ}\text{C}$  dan  $610^{\circ}\text{C}$  (gambar 2). Munculnya puncak eksotermik pada  $340^{\circ}\text{C}$  disebabkan adanya pembakaran residu senyawa organik, hal ini didukung dengan data dari defraksi sinar X (gambar 3 dan 4) yang menunjukkan struktur amorp setelah pemanasan pada  $380^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam. Puncak eksotermik pada  $490^{\circ}\text{C}$  menunjukkan terjadinya kristalisasi  $\text{PbTiO}_3$ , keadaan ini didukung dari hasil penelitian sebelumnya yaitu pada pembuatan  $\text{PbTiO}_3$  dimana struktur  $\text{PbTiO}_3$  didapat setelah pemanasan pada  $500^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam<sup>10</sup>. Kristalisasi PZT ditunjukkan dengan adanya puncak eksotermik pada  $610^{\circ}\text{C}$ . Kondisi ini didukung dengan data dari defraksi sinar X (gambar 3) yang memperlihatkan struktur PZT setelah pemanasan pada  $600^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam.

Chandratreya dan kawan-kawan<sup>1,2</sup>, telah melaporkan bahwa dalam pembentukan larutan padat PZT,  $\text{PbTiO}_3$  terbentuk sebagai hasil antara pada pemanasan  $450^{\circ}\text{C}$ . Dalam pembentukan PZT ini dapat terjadi perpindahan difusi untuk  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zr}^{2+}$  dan  $\text{Ti}^{4+}$  pada antar permukaan  $\text{PbTiO}_3/\text{ZrO}_2$  dan  $\text{PbO}/\text{PbTiO}_3$ . Pada pembentukan PZT 55/45 dari campuran alkoksida, terjadi perpindahan secara berangsur-angsur dari bentuk amorp menjadi kristal PZT 55/45 yang bagus, yang dapat diamati secara jelas dengan difraksi sinar X. Kristal PZT 55/45 yang cukup sempurna didapat setelah pemanasan pada suhu  $500^{\circ}\text{C}$  selama 6 jam (gambar 3). Hasil antara timbal titanat terbentuk pada  $490^{\circ}\text{C}$  dalam bentuk amorp, sebab dari hasil analisa difraksi sinar X pada pemanasan  $500^{\circ}\text{C}$  tidak menunjukkan adanya kristal  $\text{PbTiO}_3$ . Hasil DTA dari Nb 5+ yang didopekan pada PZT (gambar 2) tidak menunjukkan perbedaan yang berarti dari PZT tanpa didope. Pemanasan selanjutnya serbuk PZT yang terbuat dari campuran alkoksida pada  $800^{\circ}\text{C}$  menghasilkan fasa PbO yang terpisah, atau lebih menyerupai PbO berlebih yang terkristal. Kejadian ini juga terdapat pada fase tetragonal dan rombohedral pada pemanasan  $800^{\circ}\text{C}$  (gambar 3). Fase PbO ini juga terjadi pada PNZT yang teramati pada difraksi sinar X setelah pemanasan pada suhu diatas  $600^{\circ}\text{C}$  (gambar 4). Adanya PbO mungkin disebabkan penambahan timbal alkoksida berlebih yang kurang hati-hati selama proses awal hidrolisa.

Hasil dari DTA untuk contoh yang dibuat dari campuran metal oksida memperlihatkan adanya puncak-puncak eksotermis yang lemah pada  $508^{\circ}\text{C}$  dan  $736^{\circ}\text{C}$  yang menunjukkan adanya pembentukan  $\text{PbTiO}_3$  dan PZT (gambar 2). Setelah kalsinasi campuran oksida pada  $600^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam, pola difraksi sinar X, menunjukkan adanya kristal yang bagus dari hasil samping  $\text{PbTiO}_3$ , PbO dan  $\text{ZrO}_2$  yang belum bereaksi pada pembentukan PZT (gambar 5). PZT 55/45 didapat setelah pemanasan pada  $800^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam. Setelah



pemanasan pada 900°C selama 2 jam, puncak-puncak difraksi PZT sangat tajam dan tidak mengandung oksida-oksida reaktan yang tidak bereaksi (**gambar 5**). Pada pembuatan contoh PZT 55/45 secara tradisional menunjukkan adanya dua fasa yaitu fasa tetragonal dan rombohedral setelah kalsinasi pada 800°C selama 2 jam, yang menunjukkan oleh adanya puncak-puncak pada 20 (44), (49) dan (54) (**gambar 5**). **Gambar 6** menunjukkan perhitungan harga  $d$  untuk bidang rombohedral (101) dimana dasar perhitungannya menggunakan harga-harga unit sel yang telah dilaporkan oleh Jaffe dan kawan-kawan<sup>13)</sup>. Dibandingkan dengan harga  $d_{101}$  (**tabel 2**) hasil pengamatan dan **gambar 6**, terlihat bahwa, PZT yang telah dibuat dari campuran alkoksida setelah dipanaskan pada 500°C mempunyai harga  $d$  yang dekat dengan komposisi  $Pb(Zr_{0.55}, Ti_{0.45})O_3$ . Pemanasan selanjutnya akan menurunkan harga  $d$ . Hal ini disebabkan karena komposisi tersebut ada dalam daerah fluktuasi, yang kaya akan Zr (PZT rombohedral) dan daerah yang kurang akan Zr (PZT tetragonal). Telah dilaporkan bahwa zirkonium alkoksida yang tidak terhidrolisa, tidak tergantung pada perbandingan air/alkoksida<sup>11)</sup>. Sisa zirkonium yang tak terhidrolisa, akan tertinggal dalam larutan sebagai polimer. Jika hal ini terjadi, derajat hidrolisa titanium alkoksida harus sesuai dengan zirkonium, kalau tidak, stoikmetri yang tepat tidak akan diperoleh.

Penambahan atom Nb tidak memberikan efek yang berarti terhadap harga  $d_{101}$ . Harga  $d_{101}$  sedikit lebih rendah untuk PNZT setelah dipanaskan pada 800°C, ini mungkin disebabkan karena efek penambahan Nb yang disebabkan adanya kekosongan Pb berlebih, dope Nb<sup>5+</sup> untuk (Zr,Ti)<sup>4+</sup>, atau gabungan dari keduanya diatas.

Contoh yang dipanaskan pada temperatur antara 600°C-900°C memberikan ukuran kristal yang serupa yaitu sekitar 300Å. Ini disebabkan contoh-contoh yang dipanaskan pada temperatur tersebut diatas, kecepatan pertumbuhan kristalnya lambat.

**Tabel 2.** Harga-harga dari  $d_{101}$  dan ukuran kristal

Nama contoh	Suhu pemanasan	Harga $d_{101}$	Ukuran kristal (Å)
A	500°C, 6 jam	2.893	300
	600°C, 2 jam	2.893	
	800°C, 2 jam	2.889	
B	500°C, 6 jam	2.892	270 285
	600°C, 2 jam	2.892	
	800°C, 2 jam	2.883	
C	800°C, 2 jam	2.885	285
	900°C, 2 jam	2.877	285

Dalam percobaan yang terpisah, PZT 60/40 telah dibuat dari campuran alkoksida dan dipanaskan pada 800°C selama 2 jam. Fasa tetragonal tidak teramati, tetapi ada fasa ortorombik PbO yang teramati. Ini sangat menarik untuk

dicatat karena fasa PbO yang berlainan yaitu tetragonal untuk PZT 55/45, akan tetapi ortorombik untuk PZT 60/40. Boleh jadi fasa rombohedral PZT distabilkan oleh fasa PbO ortorombik, mengingat adanya fasa tetragonal PZT lebih mudah terjadi dengan adanya fasa litharge. Litharge adalah bentuk yang lebih stabil pada tempertur dan tekanan normal, tetapi adanya pengotor akan mudah menstabilkan PbO bentuk ortorombik pada temperatur kamar.

## 2). Spektrum pengukuran infra merah (IR).

Hasil IR yang terlihat pada **gambar 7 dan 8**, menunjukkan bahwa semua serbuk PZT dan PNZT yang dibuat dengan metoda pencampuran alkoksida dan pencampuran oksida masih mengandung air walaupun telah dilakukan kalsinasi sampai pada suhu 600°C. (pncak-puncak H<sub>2</sub>O terdeteksi pada 3400 dan 1600 cm<sup>-1</sup>). Adanya puncak-puncak pada 1500-1300 cm<sup>-1</sup> mungkin disebabkan oleh adanya OH dan sisa-sisa organik seperti CH<sub>3</sub> grup pada 1375 cm<sup>-1</sup><sup>12)</sup>. Akan tetapi spektra IR untuk PZT yang dibuat dari pencampuran oksida, tidak menunjukkan beberapa puncak absorpsi yang berarti pada 1500-1300 cm<sup>-1</sup> (**gambar 8**). Puncak-puncak pada 1500-1300cm<sup>-1</sup> dari endapan kering, tidak begitu tampak setelah endapan dikalsinasi pada 600°C (**gambar 7**). Oleh karena itu, diperkirakan puncak eksotermik pada data DTA sekitar 340°C terjadi karena pembakaran senyawa organik.

Dari hasil spektra IR yang diperoleh dari PZT yang dibuat melalui pencampuran oksida (**gambar 8**) dan dibandingkan dengan hasil spektra dari PbTiO<sub>3</sub> yang telah dibuat sebelumnya<sup>10)</sup>, serta didukung hasil data difraksi sinar X (**gambar 5**), maka dapat ditarik kesimpulan bahwa, dalam pembuatan PZT memlaui pencampuran serbuk oksida dapat memberikan hasil antara yang berupa fasa PbTiO<sub>3</sub>.

## 3). Distribusi ukuran partikel dan sinter

Distribusi ukuran partikel seperti yang diperlihatkan dalam (**gambar 9,10 dan 11**) menunjukkan bahwa, distribusi ukuran partikel PZT yang dibuat dari pencampuran akoksida lebih kecil dan homogen dibanding dengan PZT yang dibuat dari pencampuran oksida. Dengan menaikkan pemanasan sampai 750°C selama 20 menit, terjadi kaikkan ukuran partikel rata-rata yang cukup berarti dari 0.5 sampai 0.8 mikron (**tabel 3**). Ini disebabkan karena terjadinya aglomerasi untuk contoh yang dibuat dengan cara pencampuran alkoksida. Keadaan ini terjadi antara lain karena serbuk PZT yang terbuat dari pencampuran alkoksida mempunyai energi permukaan yang tinggi, sehingga menyebabkan terjadinya aglomerasi walaupun hanya dapat terjadi kenaikan temperatur yang rendah pada proses sinter temperatur rendah. Contoh serbuk yang terbuat dari pencampuran alkoksida setelah dikalsinasi pada 800°C, yang mempunyai ukuran partikel rata-rata 0.7-1.0 mikron, adalah jauh lebih kecil dari pada ukuran partikel rata-rata dari contoh yang terbuat dari pencampuran oksida (5.0 mikron).



**Tabel 3.** Ukuran rata-rata partikel contoh

Nama Contoh	Temperatur	Ukuran rata-rata partikel ( $\mu\text{m}$ )
A	80°C, 12 jam.	0.4
	600°C, 2 jam.	0.5
	600°C, 2 jam; 750°C, 20 min	0.8
	800°C, 2 jam.	1.0
B	80°C, 12 jam.	0.4
	600°C, 2 jam	0.5
	800°C, 2 jam	0.7
C	ZrO <sub>2</sub>	1.0
	TiO <sub>2</sub>	2.0
	PbO	4.0
	600°C, 2 jam	0.5
	800°C, 2 jam	5.0

Serbuk contoh yang telah dikalsinasi pada 500°C selama 6 jam dan 800°C selama 2 jam, dicetak untuk bentuk plet dengan diameter 5mm, dan disinter pada 1200°C selama 1 jam. **Tabel 4** menunjukkan berat jenis dari contoh sebelum disinter (green density) dan sesudah pada 1200°C selama 1 jam. Dari tabel tersebut menunjukkan bahwa contoh yang dikalsinasi pada 800°C selama 2 jam dan disinter 1200°C selama 1 jam mempunyai berat jenis yang jauh lebih kecil dari berat jenis secara teoritis (sekitar 8.0 g/cm<sup>3</sup>). Hal ini disebabkan karena terjadinya aglomerat yang besar pada kalsinasi 800°C selama 2 jam, sehingga menghalangi proses sinter. Dengan adanya aglomerat mengakibatkan adanya pori-pori yang terjebak (trapping pores), sehingga mengurangi difusi sinter batas butir.

**Tabel 4.** Berat jenis dari contoh

Nama Contoh	Sebelum proses sinter	Setelah proses sinter, 1200°C
A		
	500°C, 6 jam	3.9
	800°C, 2 jam	3.5
B		
	500°C, 6 jam	3.9
	800°C, 2 jam	3.5
C		
	800°C, 2 jam	3.7

Oleh karena itu, karena serbuk yang dibuat dari campuran alkoksida mempunyai energi permukaan yang besar, maka serbuk endapan yang terjadi harus dikalsinasi pada temperatur yang rendah untuk menghindari aglomerasi yang merugikan.

## KESIMPULAN

- 1). Endapan PZT yang telah dikeringkan mempunyai bentuk amorp. Endapan serbuk PZT bentuk amorp tersebut mulai tertransformasikan ke bentuk kristal pada suhu 480°C.
- 2). Data dari DTA menunjukkan puncak-puncak eksotermik pada 340°C, 490°C dan sekitar 610°C. Puncak eksotermik pada 340°C adalah pembakaran sisa-sisa organik, puncak eksotermik pada 490°C menunjukkan terjadinya kristalisasi PbTiO<sub>3</sub> dan puncak eksotermik pada 610°C menunjukkan terjadinya kristalisasi PZT.
- 3). Adanya fasa-fasa ferroelektrik tetragonal dan rombohedral untuk kedua serbuk contoh yang dibuat dari campuran alkoksida dan campuran oksida, disebabkan oleh karena fluktuasi dalam komposisi. Lebih lanjut, perbedaan kecepatan hidrolisa atau polimerisasi dari alkoksida-alkoksida akan menghasilkan fluktuasi komposisi serbuk endapan PZT.
- 4). Serbuk endapan yang dibuat dari campuran alkoksida adalah mempunyai ukuran partikel yang kecil dan seragam dengan energi permukaan yang tinggi.
- 5). Efek penambahan Nb tidak begitu berpengaruh terhadap ukuran kristal, ukuran partikel dan berat jenis.
- 6). Serbuk endapan yang dibuat dari campuran alkoksida yang telah dikalsinasi pada 500°C selama 6 jam, dan selanjutnya disinter dalam udara pada 1200°C selama 1 jam memberikan berat jenis yang tinggi, diperkirakan 95% dari berat jenis teoritis.

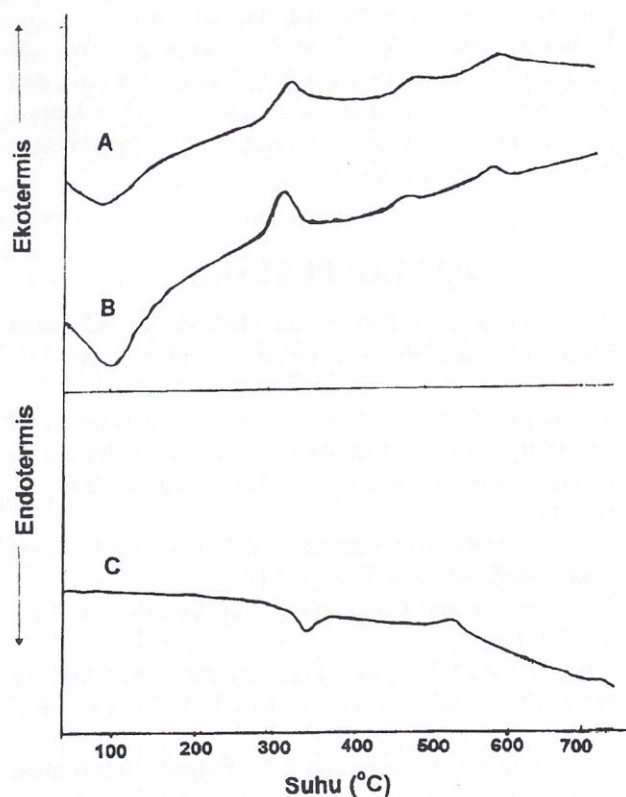
## DAFTAR PUSTAKA

- 1). A. L. Stuijts, New Fabrication Methods for Advanced Electronic Materials, Science of Ceramics, 5, pp. 335, (1970)
- 2). J.V. Biggers and S Venkatramani, Preparation and Reactivity of Lead Zirconate Titanate Solid Solutions by Precipitation from Aqueous Solutions, Mat Res. Bull. 13, pp. 717-722, (1978).
- 3). Y. Wu Ferroelectric Materials and Their Applications (North Holland. New York. 1991).
- 4). G.H Haetling and C.E Land J. Am. Ceram. Soc. Lett. 11.327 (1992).
- 5). S.H Cho and J.V Biggers, Characterization and Sintering of Lead Zirconate Titanate Powders, J. Am. Ceram. Soc. 66(10),473(1983).
- 6). R.B. Atkin R.L Holman and R.M. Fulrath, Substitution of Bi and Nb Ions in Lead Zirconate Titanate, J. Am. Ceram. Soc. 54 (2), 113 (1971).
- 7). R. B. Atkin and R.M Fulrath, Point Defects and Sintering of Lead Zirconate Titanate, J. Am. Ceram. Soc. 54 (5) 264(1971).
- 8). K.S. Mazdiasni, Fine Particle Perovskite Processing, Ceramic Bulletin 63 (4), 591 (1984).
- 9). E. Wu, K.C. Chen, and J.D. Mackenzie, Ferroelectric Ceramics- The Sol Gel Method Versus Conventional

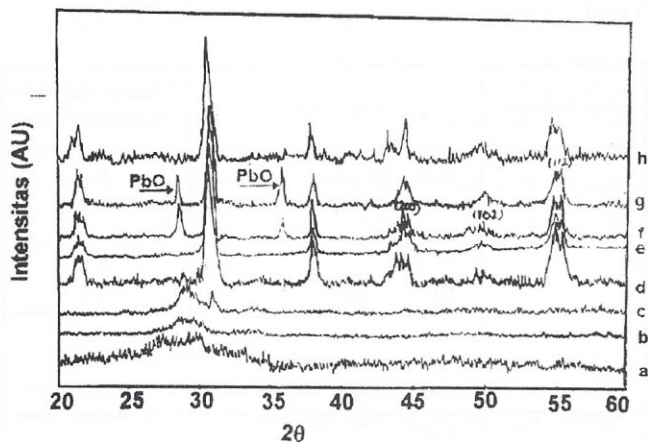


Processing, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 32, pp. 169 (1984).

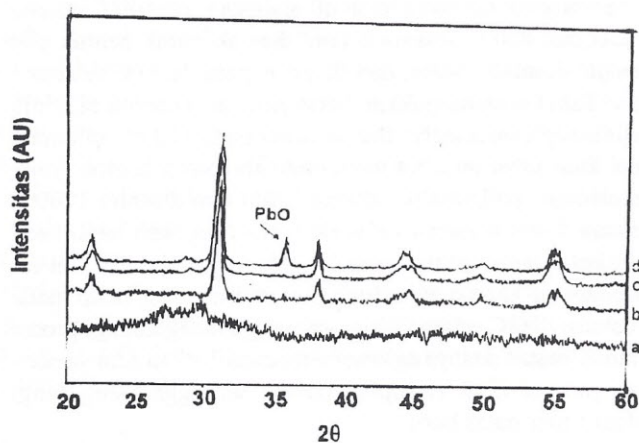
- 10). Silvester Tursiloadi, Pembuatan dan Karakterisasi Serbuk Piezoelektrik  $\text{PbTiO}_3$  dengan Proses Kimia, Prosiding Pemasaran hasil litbang ilmu pengetahuan teknik, Peran lembaga penelitian IPTEK dalam era globalisasi dan perdagangan bebas, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia, Bandung, 14-16 Oktober 1996. (inpress).
- 11). Takashi Yamaguchi and Hiroaki Yanagita, Ceramics Processing, Gihodo Shuppan, 1985.
- 12). N. Tohge, S. Takashi and T. Minami, J. Am. Ceram. Soc. 74(1), 67 (1991).
- 13). B. Jeffe, R.S. Roth, et. al. Properties of Piezoelectric Ceramics in the Solid Solution Series  $\text{PbTiO}_3$ - $\text{PbZrO}_3$ , J. Res. Natl. Bur. Stand. 55(5) 239-54 (1955).
- 14). S. S. Chandratreya, R.M. Fulrath and J. A. Pask, Reaction Mechanisms in the information of PZT Solid Solutions, J. Am. Ceram. Soc. 64 (7) 422 (1981).



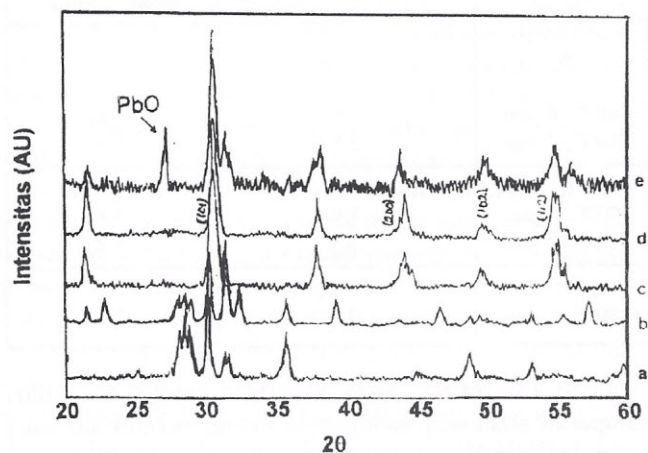
**Gambar 2.** Kurva DTA dengan pemanasan dari contoh-contoh A) Pengendapan dari campuran metal alkoksida dan B). Pengendapan dari campuran metal alkoksida yang didope dengan 2% mol  $\text{Nb}^{5+}$  dan C). Pencampuran dari  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZrO}$  dan  $\text{TiO}_2$ .



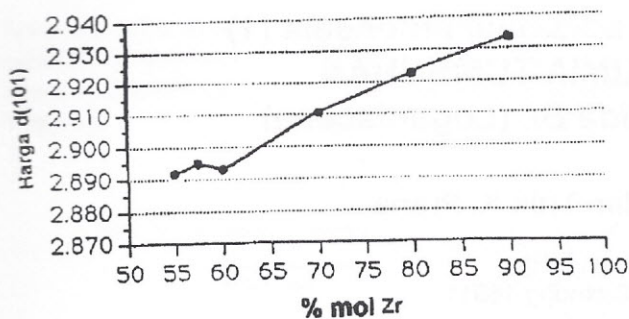
**Gambar 3.** Pola defraksi sinar x untuk PZT yang dibuat dari pencampuran metal alkoksida. (a: 80°C, 12 jam. b: 380°C, 2 jam, c: 480°C, 2 jam. d: 500°C, 6 jam. e: 600°C, 2 jam, f: 800°C, 2 jam, g: 900°C, 2 jam dan h: 800°C, 2 jam/1200°C, 1 jam.)



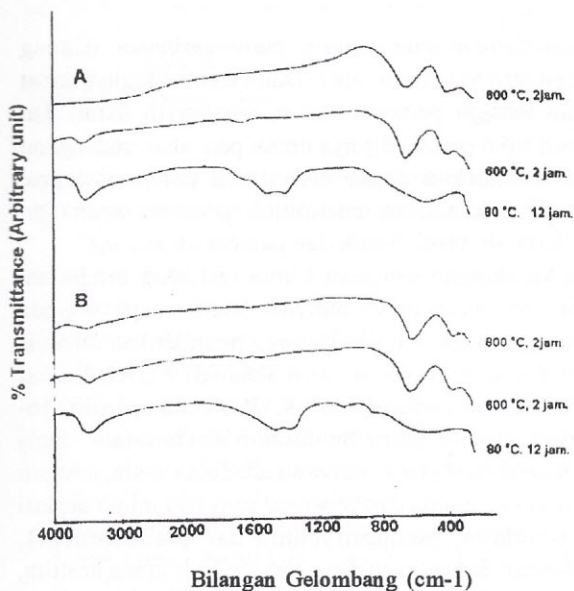
**Gambar 4.** Pola defraksi sinar x untuk PZT yang telah didope dengan Nb, dibuat dari pencampuran metal alkoksida. (a: 80°C, 12 jam. b: 500°C, 2 jam, c: 600°C, 2 jam. dan d: 800°C, 2 jam)



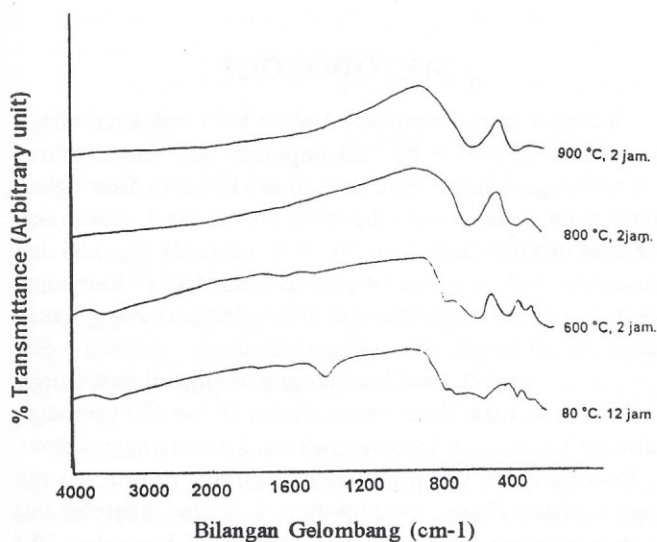
**Gambar 5.** Pola defraksi sinar x untuk PZT yang dibuat dari pencampuran metal oksida. (a: 80°C, 12 jam, b: 600°C, 2 jam, c: 800°C, 2 jam. d: 900°C, 2 jam dan e: 800°C, 2 jam/1200°C, 1 jam.)



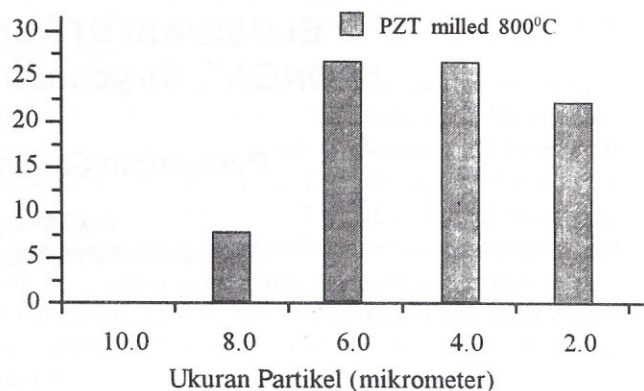
Gambar 6. Hasil perhitungan harga d untuk PZT.



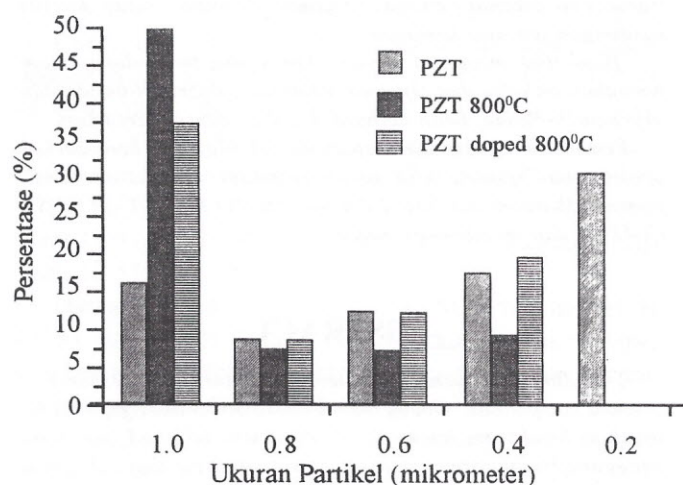
Gambar 7. Spektra dari hasil-hasil IR untuk contoh-contoh A) Pengendapan dari campuran metal dan B) Pengendapan dari campuran metal alkoksida yang didope dengan 2% mol  $Nb^{5+}$



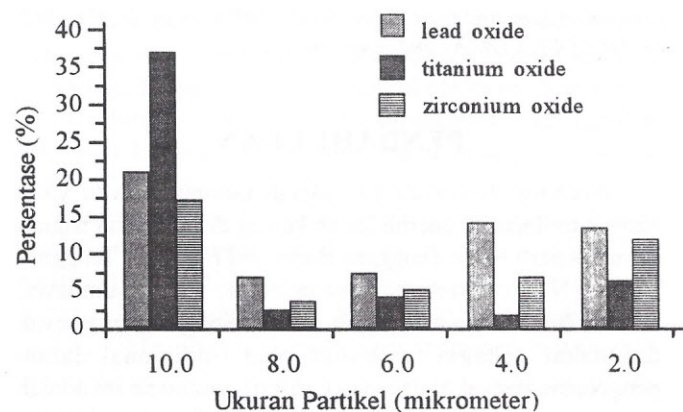
Gambar 8. Spektra dari hasil-hasil IR untuk contoh yang dibuat dari campuran  $PbO$ ,  $ArO_2$  dan  $TiO_2$



Gambar 9. Distribusi ukuran partikel untuk contoh yang dibuat dari campuran  $PbO$ ,  $ZrO_2$  dan  $TiO_2$ .



Gambar 10. Distribusi ukuran partikel untuk contoh endapan dari campuran metal alkoksida dan endapan dari campuran metal alkoksida yang didope dengan 2% mol  $Nb^{5+}$



Gambar 11. Distribusi partikel untuk  $PbO$ ,  $ZrO$  dan  $TiO_2$  yang digunakan untuk pembuatan PZT dengan pencampuran serbuk.